

Title	気液スラグ流を伴う並列マイクロリアクタのスラグ長さ推定と設計手法の開発(Abstract_要旨)
Author(s)	宮林, 圭輔
Citation	Kyoto University (京都大学)
Issue Date	2015-05-25
URL	http://dx.doi.org/10.14989/doctor.k19190
Right	許諾条件により本文は2016-05-24に公開
Type	Thesis or Dissertation
Textversion	ETD

京都大学	博士（工学）	氏名	宮 林 圭 輔
論文題目	気液スラグ流を伴う並列マイクロリアクタのスラグ長さ推定と設計手法の開発		
<p>（論文内容の要旨）</p> <p>本論文は、微小な径を持つ流路（マイクロ流路）において生じる、気体および液体の微小な流体塊の流れ（気液スラグ流）を利用した化学プロセスを対象に、スラグ長さ計測手法を提案し、さらにその適用対象として想定される化学反応器の設計法について検討した結果をまとめたものであり、6章からなる。</p> <p>第1章は序論であり、まずマイクロ流路中の2相流において生じる様々な流動様式のうち、特にスラグ流がその高い界面物質移動性能から注目を集めていることを述べ、その気液反応や液液抽出操作への応用例を紹介する。次に、スラグ流を対象とした既往の研究として、界面物質移動係数などの種々のパラメータ推算式が提案されていることや、二流体間の物性の差を利用したスラグ長さ計測手法（光学的計測手法・電氣的計測手法）が提案されていることを述べる。そして、以上の既往の研究の調査結果として、気液スラグ流を利用した化学プロセスの実用化に向けて、i)種々のパラメータ推算式を利用した体系的なプロセス設計法が提案されていないこと、ii)既往のスラグ長さ計測手法はマイクロ流路の材質や構造によっては適用不可能となることを課題として示し、それらの解決策として、気液スラグ流を伴うマイクロリアクタの最適設計法の提案、および既往のスラグ長さ計測手法の代替となる手法の提案を本研究の目的とすることを述べている。</p> <p>第2章では、まず単一流路T字マイクロリアクタを対象に、気体（窒素）及び液体（水）それぞれの供給圧力とT字ミキサ内流体流動挙動の観察結果から、気液スラグ流生成挙動と気体及び液体供給圧力変動の関係を実験的に明らかにした。この関係に基づいて、液体圧力上昇時間と液体圧力降下時間の比が気体及び液体供給流量の比に等しくなることを明らかにし、気体または液体供給圧力データと気体または液体供給流量から、時々刻々と生成される気体スラグ及び液体スラグの長さを個別に推定する手法を提案し、スラグ長さを実測値との相対誤差が2%以内で正確に推定できることを確認した。そして、提案した手法により、ステンレス製流路などの、光学的・電氣的手法が適用不可能な流路内のスラグの長さの推定が可能となることを示した。</p> <p>第3章では、マイクロ流路の内壁面に液体の薄膜（液膜）が存在する条件における、気体または液体供給圧力計測情報に基づく気体・液体スラグ長さの推定法を提案している。本章では、単一流路T字マイクロリアクタを対象に、気体（窒素）及び液体（ドデカン）それぞれの供給圧力の計測結果とT字ミキサ内流体流動挙動の観察結果より、気液スラグ流の生成にともなって気体・液体供給圧力が周期的に変動すること、さらにその1周期の間に気体スラグと液体スラグが1つずつ生成されることを明らかにした。続いて、気液スラグ流の線速と気体・液体供給流量の実測データから気液スラグ流についての物質収支に基づき、生成される液膜厚さが求められることを示した。そして、既往の研究で提案されている液膜厚さ推算式中のパラメータを実験データから決定し、気体または液体供給圧力、気体・液体供給流量、気体・液体物性に基づいて、生成される液膜の厚さと気体・液体スラグ長さを推定する手法を提案した。また、提案手法により、物質収支に基づく計算値との相対誤差が8.5%以内で推定できることを確</p>			

京都大学	博士（工学）	氏名	宮 林 圭 輔
<p>認した。</p> <p>第 4 章では、まず、第 2 章で提案された推定手法の 4 並列 T 字マイクロリアクタへ適用可能性について検証した。まず、並列化された T 字マイクロリアクタの各液体供給流路それぞれに設置された圧力センサそれぞれにおいて、各 T 字マイクロリアクタでのスラグ流生成に対応する圧力変動情報が互いに干渉しあうことなく得られることを確認した。その結果、第 2 章で提案された推定手法が並列 T 字マイクロリアクタに対しても適用可能であることを確認した。しかしながら、この提案推定手法をそのまま適用した際には、リアクタ並列数の増加に伴って、必要なセンサ数が増加し、センサコストの増大を招く。そこで本章では、液体分配器最上流部の 1 点に設置された圧力センサにより得られる計測情報が、並列化された各リアクタでの気液スラグ流生成に対応する圧力変動情報を含んでいるとの知見に基づき、上述の圧力センサにより得られるデータのフーリエ変換により得られるスペクトルのピーク周波数から、各リアクタでの気液スラグ流生成に対応する圧力変動周期を推定可能であることを示した。さらに、並列化されたリアクタのうちの 1 つのみが閉塞した場合において、気体・液体の物質収支式や T 字ミキサにおいて生成されるスラグ長さの推算式に基づいて、スラグ長さを実測値との誤差が 5%以内で推定できることを明らかにした。これにより、並列マイクロリアクタ中の 1 つのリアクタのみが閉塞が発生した場合においては、気体・液体の総供給流量と液体分配器中 1 点の圧力計測情報に基づいてスラグ長さを推定できることを明らかにし、設置センサ数の削減が可能であることを示した。</p> <p>第 5 章では、第 4 章までに提案したスラグ長さ推定手法を適用する対象の反応デバイスとして、並列化されたマイクロ流路を有する反応プレートを積層した装置（並列・積層型マイクロリアクタ）を想定し、その設計法を提示した。設計にあたって、まず、単一のマイクロ流路の設計を行い、その設計結果に基づいて、並列・積層型マイクロリアクタの流路並列数および反応プレート積層枚数を決定するという 2 段階設計法を提案した。さらに、気液スラグ流における物質移動や熱移動を計算できるように、流れの気体体積分率を時間平均化し、従来の均一相流れを対象とした管型反応器の設計方程式を拡張したモデルを提案した。そして、NaOH 水溶液を用いた CO₂ 吸収実験により構築した設計方程式の妥当性を、また気液並列反応系のケーススタディを通して、並列・積層型マイクロリアクタ設計が可能であることを例証した。そして、最後に 2 章から 4 章で提案したスラグ長さ推定手法を組み込むことにより、変動検知機能を有する気液スラグ流を用いた並列マイクロリアクタを構築可能であることを示した。</p> <p>第 6 章は結論であり、本研究の成果について総括するとともに、今後の研究課題について問題提起をしている。</p>			

(論文審査の結果の要旨)

本論文は、T字混合部を有する気液スラグ流を伴うマイクロリアクタを対象として、スラグ長さ推定法と反応器設計法に関して検討した結果をまとめたものであり、得られた主な成果は以下の通りである。

1) 単一T字マイクロリアクタのスラグ長さ推定法の開発

単一のT字マイクロリアクタにおける気液スラグ流を対象として、気体または液体体積流量と、気体または液体の供給圧力変動挙動という、気液スラグ流に対し非侵襲的に取得される情報のみに基づいて、気体および液体スラグの長さを推定する手法を開発した。そして、その有効性を実験により検証した。

2) 液膜存在下での単一T字マイクロリアクタのスラグ長さ推定法の開発

単一のT字マイクロリアクタにおける気液スラグ流を対象として、マイクロリアクタ中の流路内壁面に液膜が生じる条件下で、気液体積流量と液体の供給圧力変動周期の情報のみから、スラグ長さと液膜厚さを同時に推定する手法を開発した。

3) 並列T字マイクロリアクタのスラグ長さ推定法の開発

4 並列マイクロリアクタを対象として、上記1)で提案したスラグ長さ推定手法が適用できることを実験により明らかにした。さらに、圧力変動をフーリエ変換した情報を用いること、および並列流路の流量が均一化されるように分岐部を設計することにより、気液流れの分岐前の流量情報と、液流れの分岐前に設置した圧力センサーの情報のみから、各流路のスラグ長さを推定する手法を開発した。

4) 気液スラグ流を伴う並列マイクロリアクタの設計手法の提案

反応管各地点でのボイド率の時間平均値という概念を用いることにより、管型反応器モデルを用いて単一のT字マイクロリアクタをモデル化し、その集積体としての並列マイクロリアクタの設計手法を提案した。

このように本論文は、スラグ長さ推定手法とスラグ流を伴うマイクロリアクタの設計手法についてまとめたものであり、新規で有用な知見を多く含んでおり、学術上、実際上寄与するところが少なくない。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また、平成27年4月18日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行って、申請者が博士後期課程学位取得基準を満たしていることを確認し、合格と認めた。